

ТЕПЛОФИЗИКА И ГИДРОДИНАМИКА

УДК 544.454

DOI: 10.17223/00213411/67/2/2

**Влияние длины волны лазерного излучения
на пороги инициирования энергетических материалов***В.П. Ципилев¹, В.И. Олешко¹, А.Н. Яковлев², Е.В. Форат¹, Т.В. Гречкина¹¹ *Национальный исследовательский Томский политехнический университет, г. Томск, Россия*² *Кузбасский государственный технический университет им. Т.Ф. Горбачева, г. Кемерово, Россия*

Измерены энергетические пороги инициирования и кинетические характеристики процесса взрывного разложения азидов тяжелых металлов, тетранитрата пентаэритрита и фуразанотетразиндиоксида на различных длинах волн при длительностях воздействующего импульса $\sim 10\text{--}20$ нс. Установлено, что поведение энергетических материалов определяется длиной волны лазерного излучения и существенно меняется при инициировании в условиях открытой и закрытой облучаемой поверхности, что связано с особенностями газодинамической разгрузки тепловых микроочагов.

Ключевые слова: лазерное излучение, инициирование энергетических материалов, горячие точки, микроочаговая модель.

Введение

Количество работ, посвященных влиянию длины волны лазерного излучения (ЛИ) на поведение энергетических материалов (ЭМ), весьма ограничено, поскольку, начиная с начального этапа исследований (с 1969 г.) по настоящее время, подавляющее большинство работ выполнено на основной гармонике неодимового лазера, т.е. на длине волны 1060 или 1064 нм. На других длинах волн интерес представляют работы [1–5], а также [6, 7]. Работы [1–5] выполнены по инициированию тетранитрата пентаэритрита (тэна) на первой (1064 нм) и второй (532 нм) гармониках неодимового лазера, и их результаты являются противоречивыми. Так, в [1, 2] утверждается, что при воздействии на предварительно нагретый тэн первой гармоникой излучения при температуре образца 450 К порог инициирования H_{05} составляет 0.5 Дж/см^2 , а излучением второй гармоникой инициировать тэн при той же температуре не удалось даже при 10 Дж/см^2 . В [3] показано, что излучением второй гармоники инициировать тэн при комнатной температуре образца относительно легко ($H_{05} = 12.3 \text{ Дж/см}^2$), а излучением первой не удастся инициировать даже при $H_{05} = 120 \text{ Дж/см}^2$. В [6] нами определены пороги инициирования азидов тяжелых металлов (АТМ) на длинах волн 10600 нм (CO_2 -лазер) и 308 нм (эксимерный лазер). Показано, что в ИК-области спектра (фононное поглощение) пороговая плотность энергии для азидов свинца составляет $H_{05} = 2 \text{ Дж/см}^2$, в области прозрачности (1060 нм) $H_{05} = 5 \text{ мДж/см}^2$, а в УФ-области (собственное поглощение) порог составил 5 Дж/см^2 . Данный результат не может быть объяснен с позиций фотохимического разложения [7, 8] (цепная фотохимическая электронно-дырочная модель взрыва), поскольку в УФ-области спектра квантовый выход близок к единице, а в области прозрачности он на 4 порядка ниже. Таким образом, с точки зрения [7, 8] в эксперименте при воздействии в области прозрачности следовало ожидать увеличение порога инициирования по сравнению с УФ на 4 порядка величины. Одновременно за счет увеличения показателя поглощения (на 4–7 порядков) увеличивается поглощенная объемная плотность энергии, а следовательно, и температура облученного объема, и начальная концентрация электронно-дырочных пар. Однако эксперимент показал обратное, т.е. измеренные пороги в области прозрачности оказались, наоборот, на 3 порядка ниже по сравнению с областью собственного поглощения. Более подробно этот парадокс исследован в [9], где были определены пороги инициирования прессованных порошков, пластинчатых и нитевидных кристаллов АТМ на первой (1064 нм), второй (532 нм), третьей (354.7 нм) и четвертой (266 нм, область собственного поглощения) гармониках неодимового лазера. Измерения проводились при воздействии лазерного пуч-

* Работа выполнена в рамках программы развития ТПУ.

ка на открытую поверхность образца и на поверхность, закрытую прозрачным диэлектриком (стекло, кварц) при давлении прижатия 0.8 ГПа. Показано, что для прессованных порошков АТМ (азиды свинца и серебра) в условиях воздействия на открытую поверхность пороги инициирования на длинах волн, соответствующих области прозрачности (1064, 532 и 354.7 нм), приблизительно одинаковы (соответственно 12, 7 и 10 мДж/см² для азиды свинца), а на длине волны 266 нм наблюдается резкое повышение порога до 700 мДж/см². Однако в условиях, когда облучаемая поверхность закрыта прозрачным диэлектриком (кварц), порог инициирования уменьшается до 10 мДж/см² и становится таким же, что и в области прозрачности. Для объяснения данного, на первый взгляд парадоксального, результата авторами успешно использована тепловая микроочаговая модель [10]. Переноса данную модель на тэн и фуразанотетразиндиоксид (ФТДО), можно утверждать, что пороги инициирования тэна и ФТДО на этих длинах волн должны быть приблизительно одинаковыми. Очевидно, что ответ на возникшие вопросы связан с совершенствованием методик исследования и требует проведения экспериментальных исследований на образцах АТМ, тэна и ФТДО в широком диапазоне длин волн.

Методические подходы

Методические подходы основывались на исходной гипотезе о тепловом микроочаговом механизме инициирования. Поскольку форма тепловых микроочагов заведомо различна на разных длинах волн (плоский в области фоновонного и собственного поглощения, сферический в области прозрачности), то большое значение придавалось однородности лазерного пучка по поперечному сечению. Однородность достигалась использованием проекционной схемы формирования лазерных пучков на поверхности ЭМ [11].

Иницирование ЭМ внешним импульсом носит вероятностный характер. Рассматривается ключевое понятие физики горения и взрыва – энергетический порог инициирования (ЭПИ). ЭПИ и его зависимость от условий внешнего воздействия является основным информационным параметром для создания модельных представлений о механизмах инициирования. Особенно информативны зависимости ЭПИ от размера пучка, падающего на поверхность образца, а также от длины волны излучения (в случае лазерного излучения) и, особенно, при переходе из области прозрачности матрицы в область собственного и фоновонного поглощения.

Для определения порога инициирования в каждом конкретном опыте необходимо построение вероятностной кривой [10]. На рис. 1 приведена типичная кривая вероятности, по которой определяется энергетический порог инициирования взрывного разложения как уровень плотности энергии $H_{\text{пор}}$, соответствующий 50% вероятности подрыва. При построении кривой в каждом интервале выбранных плотностей энергий необходимо проводить до 25–30 испытаний, а вероятность инициирования оценивать по выражению $\omega = m/n$, где m – количество подъемов; n – количество

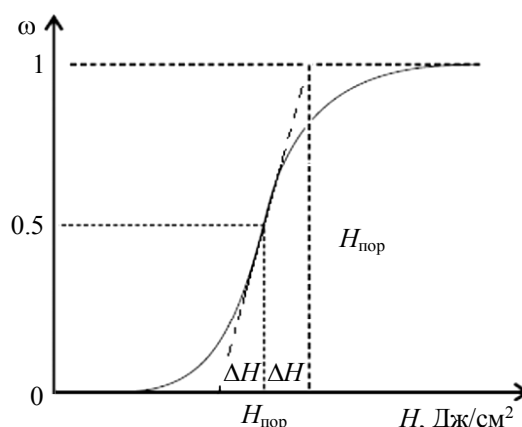


Рис. 1. Зависимость вероятности инициирования взрывного разложения от плотности энергии внешнего импульса: ω – вероятность инициирования; H – плотность энергии внешнего импульса; $H_{\text{пор}} = H_{0.5}$ – порог инициирования; ΔH – область вероятностного инициирования

испытаний. При этом для увеличения степени достоверности должно быть предусмотрено измерение энергии ЛИ в каждом испытании. Кроме того, при построении кривой вероятности определение доверительного интервала теряет смысл и вместо него нами предлагается ввести понятие областивероятностного инициирования ΔH , которая определяется пересечением касательной к кривой вероятности в точке $H = H_{05}$ с линиями $\omega = 0$ и $\omega = 1$ (рис. 1).

Для корректного определения значений H на поверхности образца должен формироваться пучок с высокой однородностью по поперечному сечению и резким контрастом на его краях. Это необходимо для корректного сопоставления результатов эксперимента с результатами численных расчетов светового режима в объеме образцов и численного моделирования задач зажигания.

Взрывное разложение энергетических материалов происходит в собственном объеме образца и является сильно сжатой (плотной) плазмой, спектр излучения которой сплошной по определению (близок к спектру «черного тела»). При разлете продуктов в условиях вакуума интенсивность свечения резко падает, при соударении с воздушной средой или элементами экспериментальной ячейки (преградами) возникает атомарное высокоинтенсивное свечение с характерным линейчатым спектром [12]. Это обстоятельство в сочетании с высоким пространственно-временным разрешением опытов (включая наблюдения за свечением только из зоны лазерного воздействия и отдельно за ее пределами) облегчает идентификацию сигналов свечения, понимание кинетики и природы процесса разложения. Кроме того, наряду с регистрацией момента возникновения свечения образца, необходима регистрация момента возникновения акустического отклика по отношению к моменту облучения, что дает дополнительную информацию о природе инициирования. Важными информационными параметрами для модельных представлений являются кинетические характеристики и закономерности как на стадии процесса быстрого взрывного разложения, так и на стадиях, предшествующих ему (стадия облучения, индукционный период). С целью получения такой информации необходимы синхронные многопараметрические измерения в режиме реального времени и с высоким временным разрешением.

При лазерном воздействии необходимо учитывать то, что показатели поглощения на разных длинах волн и для различных ЭМ могут изменяться (а следовательно, глубина проникновения света и глубина залегания тепловых очагов) на несколько порядков величины. При этом эффективность газодинамической разгрузки очагов взрывного разложения резко изменяется. Поэтому для корректного сопоставления результатов эксперимента измерения ЭПИ необходимо проводить в условиях, когда газодинамическая разгрузка или исключена, или сведена к минимуму.

Известно, что энергетические пороги инициирования в общем случае зависят от длительности лазерного импульса, давления прессования и диаметра лазерного пучка на поверхности ЭМ, поэтому необходимо стремиться облучать мишени пучками с одинаковой длительностью импульса, при одинаковом давлении и диаметре пучка. Длительности импульсов различных используемых в наших опытах лазеров (см. лазерный стенд для синхронных многопараметрических измерений с высоким временным и пространственным разрешением, опубликованный в [11]) различались незначительно (от 10 до 20 нс), и эти различия, как известно из многих литературных данных, не оказывают влияния на величину порогов. В большинстве опытов диаметр лазерного пучка на поверхности образца составлял 1 мм, что сводило к минимуму влияние размерного эффекта. Для исключения влияния газодинамической разгрузки на ЭПИ давление прессования (в случае инициирования с открытой поверхностью) и давление прижатия входного окна (закрытая поверхность, всестороннее сжатие) составляли $4 \cdot 10^8$ Н/м². Такое давление обеспечивало практически минимальные значения ЭПИ и позволяло наиболее корректно делать выводы о механизме инициирования. В связи с перечисленными требованиями эксперименты проводились на лазерном стенде, описанном в [11].

Экспериментальные результаты

Значения ЭПИ на различных длинах волн, соответствующих излучению CO₂-лазера (10600 нм), эксимерного лазера (308 нм) и четырем гармоникам неодимового лазера (1064, 532, 354.7 и 266 нм), приведены на рис. 2, а также в таблице. Из рис. 2 видно, что поведение ЭМ разных типов различно, однако можно выделить общие закономерности, присущие исследуемым ЭМ. Прежде всего, к ним относится то, что чувствительность ЭМ всех типов повышается, если облучаемую поверхность накрыть прозрачным диэлектриком с давлением прижатия, превышающим предел прочности материала.

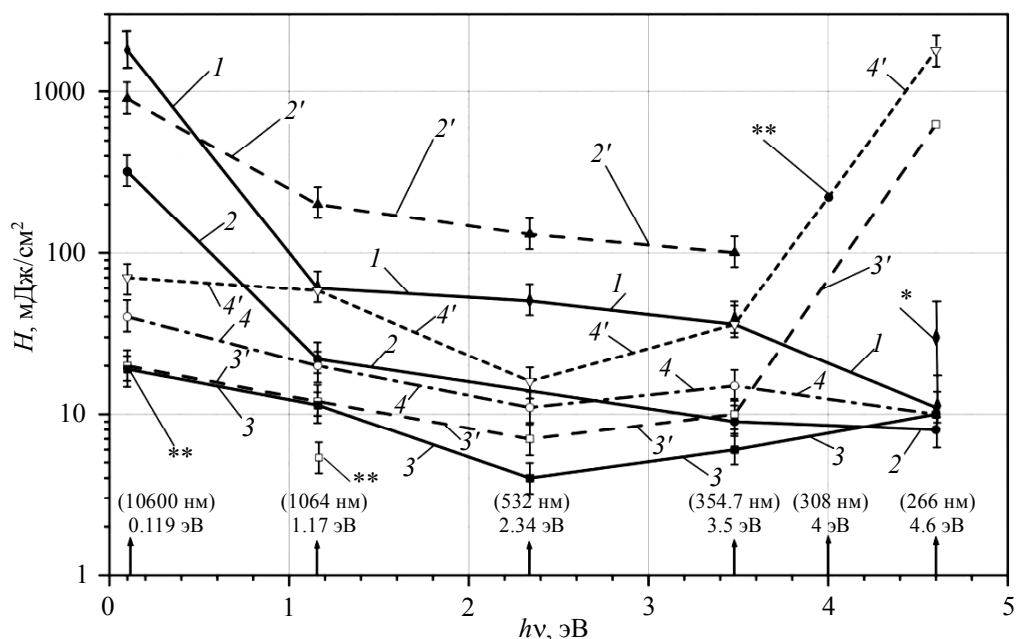


Рис. 2. Энергетические пороги инициирования ЭМ (прессованные порошки, пластинчатые кристаллы) на различных длинах волн ЛИ: 1 – тэн дисперсностью 6000 см²/г при инициировании с закрытой (фтористый барий, стекло, кварц) поверхности; 2, 2' – ФТДО с закрытой и открытой поверхности соответственно; 3, 3' – порошок азид свинца с открытой и закрытой поверхности соответственно [6, 9]; 4, 4' – пластинчатые кристаллы азид серебра с открытой и закрытой поверхности соответственно [9]. * – точка, полученная в [13]; ** – точки, полученные авторами на иных установках (СО₂-лазер миллисекундного действия [6], эксимерный лазер [6])

В условиях закрытой поверхности общей закономерностью является увеличение чувствительности с уменьшением длины волны ЛИ. Так с переходом из области фонованного поглощения (10600 нм) в область прозрачности (1064, 532 и 355 нм) пороговая плотность энергии H_{05} уменьшается для тэна и ФТДО более чем на порядок величины (таблица).

Значения порогов инициирования ЭМ образцов под прикрытием H_{05} , характерных размеров тепловых очагов R_0 и их удельного теплосодержания ω

λ_0/τ , мкм/нс		10600/20 $\mu_0 \approx 10^3 \text{ см}^{-1}$ $\mu_1 \approx 10^3 \text{ см}^{-1}$ $h\nu = 0.117 \text{ эВ}$	1064/10 $\mu_0 \approx 10^{-2} \text{ см}^{-1}$ $\mu_1 \approx 10^4 \text{ см}^{-1}$ $h\nu = 1.17 \text{ эВ}$	0.266/10 $\mu_0 \approx 10^6 \text{ см}^{-1}$ $\mu_1 \approx 10^6 \text{ см}^{-1}$ $h\nu = 4.6 \text{ эВ}$
Тэн	$H_{0.5}$, мДж/см ²	1800	50	15
	R_0 , см	10^{-3}	$\sim 10^{-5}$	10^{-6}
	ω_0 , Дж/см ³	1800	$\sim 4 \cdot 10^{-3}$	15000
	ω_1 , Дж/см ³	1800	4000	15000
ФТДО	$H_{0.5}$, мДж/см ²	300	20	8
	R_0 , см	10^{-3}	10^{-5}	10^{-6}
	ω_0 , Дж/см ³	300	$\sim 1.5 \cdot 10^{-3}$	8000
	ω_1 , Дж/см ³	300	1600	8000
PbN ₆	$H_{0.5}$, мДж/см ²	20	12	10
	R_0 , см	10^{-4}	10^{-5}	10^{-6}
	ω_0 , Дж/см ³	2.4 ($\mu_0 \approx 10 \text{ см}^{-1}$)	$1.4 \cdot 10^{-3}$	10000
	ω_1 , Дж/см ³	1600	1400	10000
Форма очага		Плоский (тэн, ФТДО), толщиной около 10^{-3} – 10^{-4} см. Сфера (PbN ₆), объемом около 10^{-12} см ³	Сфера, объемом около 10^{-15} см ³	Плоский, толщиной около 10^{-6} – 10^{-5} см

Примечание. λ_0 – длина волны излучения, мкм; τ – длительность импульса излучения, нс; μ_0 – показатель поглощения матрицы ЭМ, см⁻¹; μ_1 – показатель поглощения в объеме очага; ω_0 – объемная поглощенная плотность энергии матрицы, Дж/см³; ω_1 – объемная поглощенная плотность энергии в очаге; R_0 – размер очага.

При переходе в область собственного поглощения (308 и 266 нм) чувствительность становится максимальной, практически одинаковой для всех типов ЭМ и составляет около 10 мДж/см². При этом форма, размеры и удельное теплосодержание очагов ω на пороговом уровне воздействия в приближении адиабатических условий нагрева:

– в области прозрачности матрицы

$$\omega = 3H_{05} \cdot F_0 / 4 R_0, \quad (1)$$

где R_0 – размер теплового микроочага ($R_0 \approx 1/\mu$ в ИК- и УФ-области воздействия; $R_0 \approx 10^{-5}$ см в области прозрачности матрицы, что соответствует характерному размеру поглощающих неоднородностей, неизбежно присутствующих в матрице (например, металлические кластеры в АТМ, сажаемые частицы в тэна и ФТДО));

– в области фоновонного и собственного поглощения

$$\omega = F_0 \cdot H_{05} \cdot \mu \quad (2)$$

(где F_0 – коэффициент связи между освещенностью поверхности и освещенностью в объеме образца; μ – показатель поглощения очага), разных образцов могут значительно различаться. Азид свинца имеет высокую чувствительность на всех длинах волн (около 10 мДж/см²), слабо зависящую от условий на облучаемой поверхности (открыта – закрыта), однако на четвертой гармонике излучения (266 нм) порог инициирования азид свинца резко возрастает (от 10 до 700 мДж/см²). Поведение пластинчатых кристаллов АТМ схоже с поведением порошков, однако их чувствительность значительно ниже (рис. 2, кривые 4 и 3 соответственно).

При оценке теплосодержания очага при воздействии в области прозрачности теплосодержание очага ω_1 находилось по формуле (1), а теплосодержание матрицы ω_0 – по формуле (2). В области фоновонного и собственного поглощения считалось, что нагревается засвеченный объем матрицы. Тогда показатель поглощения засвеченного объема равен показателю поглощения матрицы, а $\omega_1 = \omega_0$ и определяется по формуле (2).

В условиях воздействия на открытую поверхность в поведении ЭМ наблюдаются большие различия и особенности. Так, тэн не удается инициировать ни на одной из длин волн при плотностях энергии, предельно достижимых на исследовательском стенде (100 Дж/см²) при данных размерах лазерного пучка (1 мм). ФТДО инициируется с открытой поверхности на всех длинах волн кроме 266 нм, а чувствительность АТМ в УФ-области резко понижается.

С учетом сказанного некоторые характерные результаты эксперимента сведены в таблицу. Здесь при оценке удельного теплосодержания матрицы ω_0 и теплового очага ω_1 использовались следующие значения: в области прозрачности матрицы $F_0 = 8.4$ для порошков тэна и ФТДО и $F_0 = 12.7$ для порошков азид свинца; в УФ-области $F_0 = 0.96$ для порошков тэна и ФТДО и $F_0 = 0.9$ для порошков азид свинца; в ИК-области (10.6 мкм) $F_0 = 0.96$ для порошков тэна и ФТДО и $F_0 = 12$ для порошков азид свинца.

Обсуждение результатов

Прежде всего, рассмотрим поведение ЭМ в условиях закрытой поверхности облучаемых образцов, поскольку газодинамическая разгрузка из реакционной зоны в данном случае практически исключена. Напомним, что в литературе обсуждаются, в основном, две модели лазерного инициирования, развитые для АТМ. Согласно первой из них, низкопороговое инициирование АТМ связано с локализацией энергии ЛИ на оптических неоднородностях с последующим разогревом и образованием горячих точек (ГТ) [10]. Согласно второй [7, 8], в матрице АТМ при поглощении фотонов происходит образование электронно-дырочных пар с последующим их размножением по цепному механизму и развитием взрывного разложения. Сравним поведение образцов на различных длинах волн по величине ω_0 , которая представляет собой пороговую объемную поглощенную плотность энергии матрицы ЭМ. Видно, что эта величина минимальна в области прозрачности матрицы, где квантовый выход образования электронно-дырочных пар составляет порядка 10^{-4} , т.е. очень мал в силу того, что энергия фотона на первой гармонике излучения при $\lambda_0 = 1.064$ мкм (1.17 эВ) меньше ширины запрещенной зоны ЭМ (от 3 до 4 эВ). Согласно [7, 8], переход из области прозрачности в УФ-область (область собственного поглощения; 266 нм; 4.6 эВ), где не только квантовый выход электронно-дырочных пар выше на 4 порядка, но и показатель поглощения μ выше на 4–6 порядков, должен привести к резкому (на много порядков величины) повышению чувствительности. Однако наблюдаемый экспериментальный пороговый энерговклад ω_0 при пере-

ходе в область собственного поглощения, наоборот, возрастает для азиды свинца на 7 порядков величины (от $\approx 10^{-3}$ до 10^4 Дж/см³, см. таблицу). При переходе в область фононного поглощения (10640 нм; 0.117 эВ) образование носителей зарядов полностью исключено, однако значение ω_0 (единицы Дж/см³) почти на 4 порядка меньше, чем в УФ-области. Подобное поведение характерно не только для АТМ, но и для тэна и ФТДО.

Таким образом, для рассмотренных в работе ЭМ (азиды свинца, серебра, тэн и ФТДО) результаты экспериментов сложно объяснить в рамках фотохимической модели лазерного импульсного инициирования ЭМ.

В то же время результаты экспериментов не противоречат тепловой очаговой модели лазерного импульсного инициирования. В рамках этой модели в области прозрачности (1064, 532 и 354.7 нм) тепловой очаг формируется на поглощающей неоднородности в результате ее нагрева, оптического пробоя или нагрева с последующим оптическим пробоем и образованием ГТ. Такие неоднородности неизбежно присутствуют в результате локальной нестехиометрии при синтезе ЭМ и формируются в виде коллоидных частиц (кластеров) с характерным размером $R_0 = 10^{-5}$ см [14]. При этом пороговое теплосодержание очага ω_1 составляет для тэна 4000 Дж/см³, для ФТДО 1600 Дж/см³ и для азиды свинца 1400 Дж/см³ (см. таблицу). В области фононного и собственного участков спектров поглощения инициирование реализуется как результат нагрева матрицы. Видно, что при переходе из области прозрачности в область собственного поглощения теплосодержание очага ω_1 , а следовательно, и температура нагрева $\Delta T = \omega_1/c\rho$, растут незначительно. Данное повышение связано с различиями в форме очагов и их размеров R_0 . В частности, в УФ-области размер очага (толщина реакционного слоя) практически на порядок меньше, чем в области прозрачности, и для обеспечения его реакционной способности необходимо повышение температуры. При переходе в область фононного поглощения теплосодержание и температура очага несколько уменьшаются (тэн, ФТДО) или практически не изменяются (азид свинца), зато размер очага увеличивается на порядок. Такое поведение полностью соответствует теории очагового зажигания ЭМ внешним импульсом вообще и критическому значению параметра Франк-Каменецкого δ в частности:

$$\delta = (Q\rho E/\lambda RT_0^2) R_0^2 k_0 \cdot \exp(-E/RT_0) \geq \delta_{кр}, \quad (3)$$

где T_0 – температура очага, К; R_0 – радиус очага, см; $Q\rho$ – тепловой эффект химической реакции, Дж/см³; E – энергия активации, кал/моль; R – универсальная газовая постоянная, кал/(моль·К); k_0 – предэкспонент, с⁻¹; λ – коэффициент теплопроводности, Вт/(см·К); $\delta_{кр}$ – критическое значение параметра Франк-Каменецкого.

Из (2) видно, что реакционная способность очага определяется его размером R_0 и температурой T_0 , а связь между этими параметрами нелинейная. Однако очевидно, что для реализации взрывного разложения с уменьшением размера очага необходимо увеличивать его температуру нагрева и наоборот. Пороговые значения ω_1 в различных областях спектра соответствуют выводам (3) и это является основанием утверждать, что в условиях закрытой поверхности для всех рассмотренных ЭМ и длин волн механизм инициирования является тепловым микроочаговым.

В условиях инициирования с открытой поверхности образцов общей закономерностью является повышение порогов по сравнению с закрытой. Особенно это наблюдается для газифицирующихся ЭМ (тэн, ФТДО), у которых основная реакция разложения происходит в газовой фазе. Наиболее вероятной причиной низкой чувствительности является реализация эффективной газодинамической разгрузки тепловых очагов через свободную поверхность на стадии газификации, т.е. до начала быстрого взрывного разложения. Этот процесс резко снижает реакционную способность очагов, повышает порог и, в частности, определяет практическую невозможность инициирования тэна с открытой поверхности.

Возможность инициирования ФТДО в условиях открытой поверхности связана, по-видимому, с более высокой скоростью реакции разложения по сравнению с тэном. Тем не менее в области прозрачности инициирование можно считать низкопороговым (200, 130 и 100 мДж/см² на длинах волн 1064, 532 и 354.7 нм соответственно). Однако в ИК-области газодинамическая разгрузка очага возрастает за счет того, что плоский очаг формируется в приповерхностном слое, его размер определяется глубиной проникновения излучения в ЭМ и составляет величину $R_0 \sim 1/\mu_0 = 10^{-3}$ см.

Характерное же время газодинамической разгрузки очага τ_p составляет

$$\tau_p \sim 1/\nu\mu = 10^{-8} \text{ с} = 10 \text{ нс}, \quad (4)$$

где v – скорость разлета продуктов газификации, принятая около 1 км/с. Это время соизмеримо с временем нагрева очага ($\tau_{\text{и}} = 10\text{--}20$ нс) и это означает, что за время создания теплового очага он частично или полностью разгружается по запасу тепла, температуре и давлению. Вследствие этого пороговая плотность энергии возрастает от 300 до 900 мДж/см².

В УФ-области невозможность инициирования ФТДО с открытой поверхности связана с очень малой толщиной разогреваемого приповерхностного слоя (прядка $10^{-4}\text{--}10^{-5}$ см). Поэтому наиболее вероятной причиной такого поведения ФТДО являются предельно малые времена газодинамической разгрузки очага на стадии газификации (еще до стадии взрывного разложения). Это время в соответствии с (4) составляет около $10^{-10}\text{--}10^{-11}$ с, что на несколько порядков меньше длительности ЛИ. Таким образом, к моменту окончания лазерного воздействия очаг оказывается полностью разгруженным.

Более сложные процессы развиваются при инициировании АТМ с открытой поверхности. Для их понимания процесс инициирования ЭМ условно разделим на 4 стадии. Отдельно выделим стадию высокотемпературного нагрева очагов без учета химической реакции разложения. За ней для газифицирующихся ЭМ следует стадия газификации в окрестности очагов, прорыв газов в поры и через поверхность, обеспечивая интенсивную газодинамическую разгрузку с возможным образованием низкотемпературного макроочага. Далее следует стадия развития очага (очагов) и зажигания образца в результате основной химической реакции разложения. На 4-й стадии горение переходит в режим детонации (взрывного разложения). Отметим, что 4-стадийный процесс характерен для тэна и ФТДО.

В АТМ стадия газификации практически отсутствует, т.е. процесс взрывного разложения 3-стадийный. Так, в азиде свинца газодинамическая разгрузка происходит после стадии основного химического разложения, т.е. за счет продуктов разложения, поэтому ее эффективность значительно ниже, а условия развития тепловых очагов в очаги взрывного разложения лучше, чем в газифицирующихся ЭМ. Поэтому в области прозрачности пороги инициирования АТМ повышаются по сравнению с порогами в случае закрытой поверхности незначительно (14 и 12 мДж/см² на $\lambda_0 = 1064$ нм; 7 и 4 мДж/см² на $\lambda_0 = 532$ нм; 10 и 6 мДж/см² на $\lambda_0 = 354.7$ нм соответственно).

В УФ-области спектра удельный энерговклад от лазерного импульса при пороговых уровнях воздействия (700 мДж/см²) составляет около $3 \cdot 10^5$ Дж/см³, что примерно на 2 порядка превышает удельную теплоту взрывного разложения АТМ ($\sim 5 \cdot 10^3$ Дж/см³), т.е. вкладом химической энергии взрывного разложения в образование очага можно пренебречь. Одновременно с созданием тонкого плазменного слоя в приповерхностном слое ЭМ происходит его интенсивный ($10^3\text{--}10^4$ м/с) разлет в окружающее пространство. При этом характерное время плазмодинамической разгрузки очага ($\sim 10^{-10}\text{--}10^{-11}$ с) практически на 2 порядка меньше времени его создания ($\sim 10^{-8}$ с), что обеспечивает высокий уровень относительных потерь тепла из области инициирования и приводит к резкому (до 70 крат по сравнению с инициированием с закрытой поверхности) увеличению пороговой плотности энергии для поддержания необходимого запаса тепла в очаге. Поэтому попытки [15] объяснить такое повышение порогов ускоренной рекомбинацией $e\text{--}h$ -пар на открытой поверхности образца ЭМ, т.е. влиянием поверхности на условия развития цепной реакции, указывают на несостоятельность модельных представлений [7, 8, 16]. В то же время при разлете плазменной струи из зоны облучения в объеме ЭМ формируется импульс сжатия (реактивный импульс отдачи) с амплитудой до $10^9\text{--}10^{10}$ Па, достаточной для возбуждения реакции взрывчатого разложения. Таким образом, в условиях лазерного импульсного воздействия на ЭМ с открытой поверхности необходимо учитывать возможность ударно-волнового механизма инициирования.

В ИК-области спектра инициирование АТМ с открытой поверхности имеет некоторые особенности. Так, в [13] установлено, что на длине волны 10600 нм матрица АТМ прозрачна. Показатель поглощения составляет от 1 до 10 см^{-1} , поэтому прессованные порошки представляют собой (как и на длинах волн 1064, 532 и 354.7 нм) диффузно рассеивающие среды, где пространственная освещенность значительно превышает поверхностную [17]. Кроме того, в объеме образца происходит формирование спекл-структуры (локальных участков повышенной освещенности) с характерным размером спекла $R_0 \approx \lambda_0/2\pi N_0$, где N_0 – показатель преломления матрицы. Оценка размера спекла дает значение диаметра спекла $d_0 \approx 1$ мкм. При попадании поглощающей неоднородности с максимальным сечением поглощения для данной длины волны ($R_0 \approx 10^{-4}$ см) формируется тепловой микроочаг, обеспечивающий низкопороговое инициирование на уровне 20 мДж/см².

Поведение пластинчатых кристаллов АТМ качественно схоже с поведением прессованных порошков. Отличие заключается в более высоких уровнях порогов инициирования пластинчатых кристаллов по сравнению с порошками ($\sim 2\text{--}3$ раза [9]). Такие различия возможны по двум причинам. Первая – отсутствие в кристаллах развитой поверхности, на которой происходит реакция разложения, и отсутствие диффузного светорассеяния ($F_0 < 1$). Вторая – необходимость энергетических затрат на дробление на фронте ударной (детонационной) волны, поскольку реакция разложения внутри монокристалла АТМ затруднена и происходит преимущественно на поверхности [18].

Указанные особенности определяют кинетику процесса взрывного разложения, отображенную на осциллограммах (рис. 3). Видно, что самые малые задержки инициирования характерны для АТМ (десятки наносекунд), самые большие – для тэна (десятки микросекунд). В первом случае процесс взрывного разложения происходит преимущественно в твердой фазе, т.е. стадия газификации отсутствует, а тепловой микроочаг быстро переходит в очаг горения и детонацию. При высокой концентрации ГТ детонация всего объема ЭМ может возникнуть на заднем фронте ЛИ (рис. 3, *а*) или может быть сдвинута на 10–20 нс от максимума лазерного импульса, т.е. возникает ситуация, когда задержка взрывного разложения соизмерима с длительностью воздействия. В случае тэна, у которого основная реакция разложения происходит в газовой фазе, можно предположить, что процесс газификации и газодинамическая разгрузка микроочагов (с возможным усреднением по облученному объему) на стадии их нагрева замедляют процесс развития взрывного разложения, увеличивают порог инициирования и длительность индукционного периода (рис. 3, *в*, *г*, *д*). При этом в области прозрачности матрицы ($\lambda_0 = 1064$ и 532 нм) задержки на пороге инициирования различаются не сильно и составляют от 6 до 10 мкс, поскольку форма, размер, температура

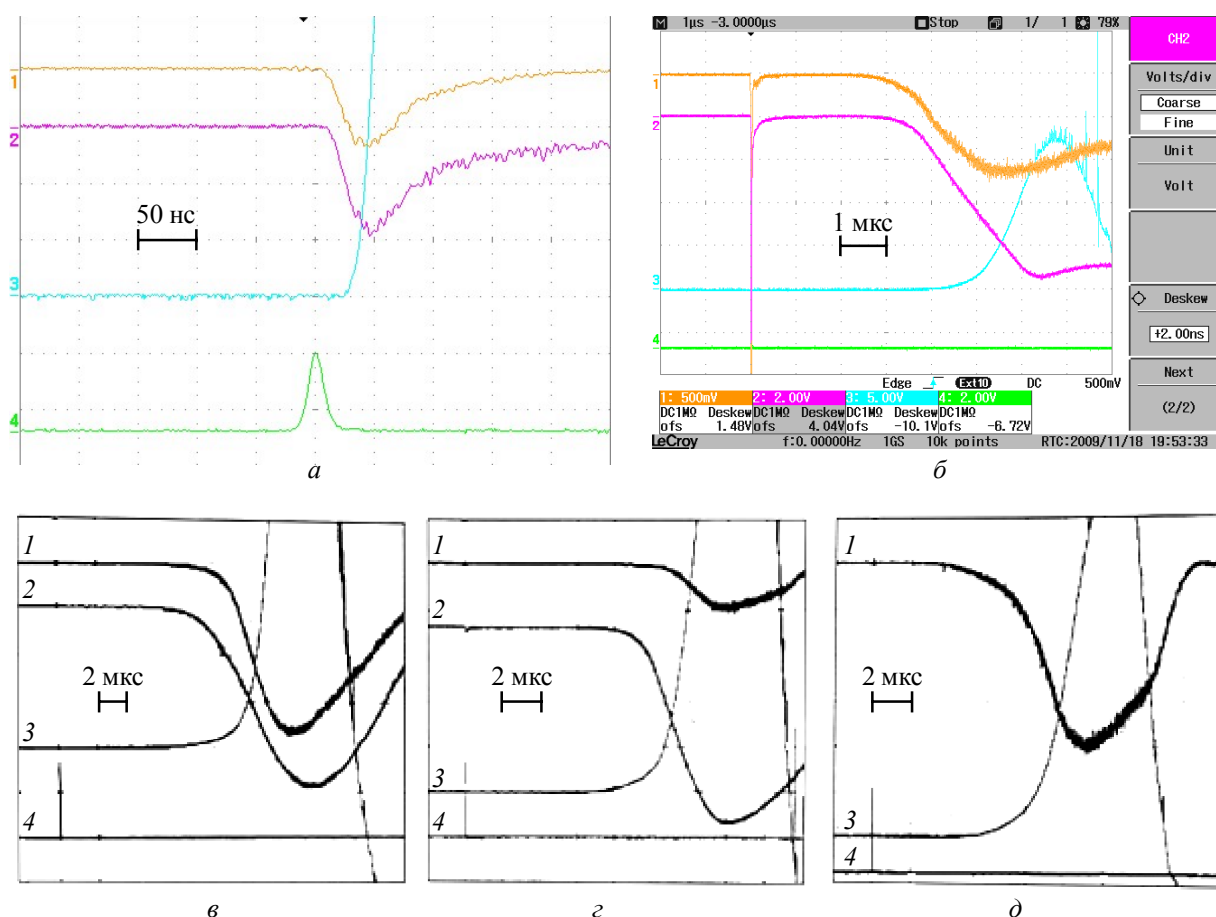


Рис. 3. Типичные осциллограммы свечения и акустического отклика взрывного разложения ЭМ: *а* – азид свинца при воздействии на длине волны $\lambda_0 = 1064$ нм при длительности развертки 50 нс на большое деление; *б* – ФТДО на $\lambda_0 = 532$ нм при развертке 1 мкс на большое деление; *в*, *г*, *д* – тэн на длинах волн $\lambda_0 = 1064$, 532 и 266 нм соответственно. 1 – сигнал фотодетектора с облученного ЛИ участка образца (сигнал зонного ФЭУ); 2 – сигнал ФЭУ панорамного обзора; 3 – сигнал акустического (ударно-волнового) датчика; 4 – временное положение и форма ЛИ (репер)

и запас тепла в микроочаге примерно одинаковы. В УФ-области спектра задержка составляет около 2 мкс, поскольку объемная плотность энергии и, соответственно, температура микроочага почти в 4 раза выше, нежели при воздействии в области прозрачности матрицы. В случае инициирования сильно газифицирующегося ФТДО пороги и задержки (рис. 3, б) уменьшаются по сравнению с инициированием тэна. По нашему мнению, такие различия, по сравнению с тэном, реализуются за счет более высокой скорости реакции разложения ФТДО. Однако во всех случаях с увеличением теплосодержания очага или уровня лазерного воздействия задержка инициирования уменьшается, что характерно для тепловой природы возникновения и развития процесса взрывного разложения.

На длинах волн 532 и 266 нм наблюдается дополнительный импульс свечения, положение которого совпадает с временным положением лазерного возбуждающего импульса. Особенно это наглядно иллюстрирует рис. 3, б, г, д. Это связано с тем, что интенсивность свечения образца в момент облучения мишени при воздействии излучением на второй и четвертой гармониках и регистрации в области спектра 600–700 нм значительно выше, чем при воздействии на первой гармонике.

Таким образом, наблюдаемое сложное поведение ЭМ легко описывается с позиций тепловой очаговой теории зажигания (инициирования) внешним импульсом. Согласно этим представлениям, реакционная способность очага при воздействии внешним импульсом определяется запасом тепла в очаге, его размером, временем нагрева и характерным временем релаксационных процессов. В условиях малых времен нагрева и воздействия на закрытую поверхность реакционная способность очагов лимитируется параметром (критерием) Франк-Каменецкого [19–21].

Взрывное разложение возникает при достижении δ некоторого критического значения $\delta_{кр}$, которое различно для очагов разной конфигурации. В первом приближении можно принять для плоского очага $\delta_{кр} = 2$, для сферического $\delta_{кр} = 8$. Показано, что в области фононного поглощения (10600 нм) формируется плоский очаг большого размера ($R_0 \sim 10^{-4} - 10^{-3}$ см) с относительно низкой температурой ($T \sim 1000$ К). В области прозрачности (1064, 532 и 355 нм) тепловые очаги формируются в результате локализации энергии ЛИ на поглощающих центрах с характерным размером около 10^{-5} см и температурой около 1500 К, которые условно можно считать сферическими. В области собственного поглощения формируется приповерхностный плоский очаг с характерным размером (толщиной) около $10^{-6} - 10^{-5}$ см и температурой, близкой к 6000 К. При пороговых уровнях лазерного воздействия сделаны оценки значений δ . Показано, что экспериментальные результаты качественно согласуются с (3).

Заключение

Исследованы закономерности и особенности лазерного инициирования тэна, ФТДО, азидов свинца и серебра в диапазоне длин волн лазерного излучения от ИК- до УФ-области спектра. Показано, что пороги инициирования и кинетические характеристики процесса взрывного разложения зависят от длины волны облучения и от условий блокировки газодинамической разгрузки микроочагов на стадии расширения и разлета продуктов разложения. Выявленные закономерности и особенности в поведении исследуемых взрывчатых веществ могут быть описаны в рамках тепловой микроочаговой модели инициирования, согласно которой тепловые реакционноспособные очаги возникают или в результате прямого нагрева матрицы энергетических материалов (ИК- и УФ-области спектра), или в результате локализации энергии лазерного излучения на оптических неоднородностях с образованием горячих точек (область прозрачности ЭМ). Показано, что процесс инициирования при лазерном импульсном воздействии условно можно разделить на стадии, а именно для АТМ применим трехстадийный механизм – создание микроочагов (1-я стадия); развитие микроочагов и переход в очаги горения за счет химической реакции разложения (2-я стадия); переход горения в взрывное разложение всего объема ЭМ (3-я стадия). Для тэна применим четырехстадийный механизм – создание микроочагов (1-я стадия); газификация с возможным усреднением температуры по макрообъему (создание макроочага) (2-я стадия); развитие макроочага с переходом в очаг горения за счет химической реакции разложения (3-я стадия); переход горения в взрывное разложение всего объема ЭМ (4-я стадия). Такое условное деление позволяет объяснить наблюдаемые сильные различия в поведении АТМ и вторичных (газифицирующихся) взрывчатых веществ (тэн, ФТДО). Так, в АТМ газодинамическая разгрузка очагов происходит после стадии основного химического разложения (в продуктах разложения), а в тэне и ФТДО – на стадии,

предшествующей стадии основного химического разложения. В первом случае (АТМ) разгрузка не оказывает сильного влияния на процесс взрывного разложения, что дает возможность инициирования с открытой поверхности образца. Во втором случае (тэн, ФТДО) влияние газодинамической разгрузки на энергетические и кинетические характеристики процесса инициирования значительно выше, что или затрудняет инициирование с открытой поверхности образца (ФТДО), или делает его невозможным (тэн).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Алукер Э.Д., Алукер Н.Л., Белокуров Г.М. и др. // Хим. физика. – 2010. – Т. 29. – № 1. – С. 49–52.
2. Алукер Э.Д., Алукер Н.Л., Кречетов А.Г. и др. // Хим. физика. – 2011. – Т. 30. – № 1. – С. 48–55.
3. Адуев Б.П., Нурмухаметов Д.Р., Лисков И.Ю., Фурега Р.И. // ФГВ. – 2014. – Т. 50. – № 1. – С. 124–129.
4. Адуев Б.П. и др. // Хим. физика. – 2015. – Т. 34. – № 11. – С. 44–49.
5. Адуев Б.П. и др. // Хим. физика. – 2013. – Т. 32. – № 8. – С. 39–42.
6. Яковлев А.Н., Александров Е.И., Зыков И.Ю. и др. // Материалы VI Всероссийской научной конференции «Фундаментальные и прикладные проблемы современной механики». – Томск, 2008. – С. 37–38.
7. Адуев Б.П., Алукер Э.Д., Белокуров Г.М. и др. // ФГВ. – 2000. – Т. 36. – № 5. – С. 78–89.
8. Кригер В.Г., Каленский А.В. // Хим. физика. – 1995. – Т. 14. – № 4. – С. 152–160.
9. Лисицын В.М., Ципилев В.П., Дамам Ж., Малис Д. // ФГВ. – 2011. – Т. 47. – № 5. – С. 106–116.
10. Александров Е.И., Вознюк А.Г. // ФГВ. – 1978. – Т. 14. – № 4. – С. 86–91.
11. Ципилев В. П., Олешко В.И., Яковлев А.Н. и др. // Изв. вузов. Физика. – 2019. – Т. 62. – № 5. – С. 161–168.
12. Бойко В.А., Держиев В.И. // Физика плазмы. – 1984. – Т. 10. – № 6. – С. 1187.
13. Разин А.В. Временные характеристики взрывного разложения азидов тяжелых металлов при лазерном импульсном инициировании: автореф. дис. ... канд. физ.-мат. наук. – Томск, 2015.
14. Виноградов А.В., Трибельский М.И. // Письма в ЖТФ. – 1979. – Т. 5. – Вып. 10. – С. 595–598.
15. Кригер В.Г., Каленский А.В. и др. // Материалы 9-й Международной конференции по радиационной физике и химии неорганических материалов (РФХ-9). – Томск, 1996. – С. 222–223.
16. Захаров Ю.А. и др. Предвзрывные явления в азиды тяжелых металлов. – М.: ЦЭИ «Химмаш», 2002. – 114 с.
17. Ovchinnikov V.A., Yakovlev A.N., Tsipilev V.P. // Изв. вузов. Физика. – 2012. – Т. 55. – № 11/3. – С. 162–164.
18. Боуден Ф., Иоффе А. Быстрые реакции в твердых веществах. – М.: ИЛ, 1962. – 243 с.
19. Франк-Каменецкий Д.А. Диффузия и теплопередача в химической кинетике. – М.: Изд-во АН СССР, 1967. – 491 с.
20. Мержанов А.Г. О критических условиях теплового взрыва очага разогрева. – Черногловка, 1968. (Репринт / ИХФ АН СССР).
21. Гольдшлегер У.И., Прибыткова Н.В., Барзыкин В.В. // ФГВ. – 1973. – Т. 9. – № 1. – С. 119–123.

Поступила в редакцию 05.05.2023,
принята в печать 12.12.2023.

Ципилев Владимир Папилович, к.т.н., профессор кафедры материаловедения НИ ТПУ, e-mail: tsipilev@tpu.ru;
Олешко Владимир Иванович, к.т.н., профессор кафедры материаловедения НИ ТПУ, e-mail: oleshko@tpu.ru;
Яковлев Алексей Николаевич, к.т.н., ректор КузГТУ, e-mail: ykovlevan@kuzstu.ru;
Форат Егор Викторович, ст. преподаватель Школы базовой инженерной подготовки НИ ТПУ, e-mail: forat@tpu.ru;
Гречкина Татьяна Валерьевна, к.т.н., доцент кафедры материаловедения НИ ТПУ, e-mail: greta_TV@tpu.ru.

THERMAL PHYSICS AND HYDRODYNAMICS

UDC 544.454

DOI: 10.17223/00213411/67/2/2

Effect of laser radiation wavelength on the thresholds of initiation of energy materials

V.P. Tsipilev¹, V.I. Oleshko¹, A.N. Yakovlev², E.V. Forat¹, T.V. Grechkina¹

¹ Tomsk Polytechnic University, Tomsk, Russia

² T.F. Gorbachev Kuzbass State Technical University, Kemerovo, Russia

Abstract: The energy thresholds of initiation and kinetic characteristics of the explosive decomposition process of heavy metal azides (HMA), pentaerythrite tetranitrate (PETN), and furazanotetrazindioxide (FTDO) were measured at various wavelengths and the impacting pulse durations of ~ 10–20 ns. It is established that the behavior of energy materials changes significantly when initiated under the open and closed surface conditions, which is associated with the peculiarities of the gas-dynamic unloading of thermal microfoci.

Keywords: laser radiation, initiation of energy materials, hot spots, microfocal model.

Acknowledgments: The research was supported by the TPU development program.

For citation: Tsipilev V.P., Oleshko V.I., Yakovlev A.N., Forat E.V., Grechkina T.V. (2024) Effect of laser radiation wavelength on the thresholds of initiation of energy materials. *Izvestiya vuzov. Fizika*. 67(2). pp. 14–24. DOI: 10.17223/00213411/67/2/2

REFERENCES

1. Aluker E.D., Aluker N.L., Belokurov G.M., et al. (2010) *Khimicheskaya fizika*. 29(1). pp. 49–52. (In Russian.)
2. Aluker E.D., Aluker N.L., Krechetov A.G., et al. (2011) *Russian Journal of Physical Chemistry B*. 5(1). pp. 67–74.
3. Aduv B.P., Nurmukhametov D.R., Liskov I.Yu., Furega R.I. (2014) *Combustion, Explosion, and Shock Waves*. 50(1). pp. 113–117.
4. Aduv B.P. et al. (2015) *Khimicheskaya fizika*. 34(11). pp. 44–49. (In Russian.)
5. Aduv B.P. et al. (2013) *Khimicheskaya fizika*. 32(8). pp. 39–42. (In Russian.)
6. Yakovlev A.N., Aleksandrov E.I., Zykov I.Yu., et al. (2008) *Materialy VI Vserossiyskoy nauchnoy konferentsii «Fundamental'nye i prikladnye problemy sovremennoy mekhaniki»* [Proceedings of the VI All-Russian scientific conference "Fundamental and applied problems of modern mechanics"]. Tomsk. pp. 37–38. (In Russian.)
7. Aduv B.P., Aluker E.D., Belokurov G.M., et al. (2000) *Combustion, Explosion, and Shock Waves*. 36(5). pp. 622–632.
8. Kriger V.G., Kalensky A.B. (1995) *Chemical Physics Reports*. 14(4). pp. 556–564.
9. Lisitsyn V.M., Tsipilev V.N., Damamme G., Malis D. (2011) *Combustion, Explosion, and Shock Waves*. 47(5). pp. 591–600.
10. Aleksandrov E.I., Voznyuk A.G. (1978) *Fizika gorenii i vzryva*. 14(4). pp. 86–91. (In Russian.)
11. Tsipilev V. P., Oleshko V.I., Yakovlev A.N., et al. (2019) *Izvestiya vuzov. Fizika*. 62(5). pp. 161–168. (In Russian.)
12. Boyko V.A., Derzhiev V.I. (1984) *Fizika plazmy*. 10(6). p. 1187. (In Russian.)
13. Razin A.V. (2015) *Vremennye kharakteristiki vzryvnogo razlozheniya azidov tyazhelykh metallov pri lazernom impul'snom initsirovanii* [Temporal characteristics of the explosive decomposition of heavy metal azides during laser pulse initiation]. Dissertation. Tomsk. (In Russian.)
14. Vinogradov A.V., Tribel'skiy M.I. (1979) *Pis'ma v Zhurnal tekhnicheskoy fiziki*. 5(10). pp. 595–598. (In Russian.)
15. Kriger V.G., Kalenskiy A.V., et al. (1996) *Materialy 9-y Mezhdunarodnoy konferentsii po radiatsionnoy fizike i khimii neorganicheskikh materialov* [Materials of the 9th International conference on radiation physics and chemistry of inorganic materials]. Tomsk. pp. 222–223. (In Russian.)
16. Zakharov Yu.A. et al. (2002) *Predvzryvnye yavleniya v azidakh tyazhelykh metallov* [Pre-explosion phenomena in heavy metal azides]. Moscow: TsEI «Khimfash». (In Russian.)
17. Ovchinnikov V.A., Yakovlev A.N., Tsipilev V.P. (2012) *Izvestiya vuzov. Fizika*. 55(11/3). pp. 162–164. (In Russian.)
18. Bouden F., Ioffe A. (1962) *Bystrye reaktsii v tverdykh veshchestvakh* [Fast reactions in solids]. Moscow: Izdatel'stvo inostrannoy literatury. (In Russian.)
19. Frank-Kamenetskiy D.A. (1967) *Diffuziya i teploperedacha v khimicheskoy kinetike* [Diffusion and heat transfer in chemical kinetics]. Moscow: Academy of Sciences of USSR. (In Russian.)
20. Merzhanov A.G. (1968) *O kriticheskikh usloviyakh teplovogo vzryva ochaga razogreva* [On the critical conditions of a thermal explosion of a heating source]. Chernogolovka: Reprint of the Institute of Chemical Physics of the Academy Sciences of the USSR. (In Russian.)
21. Gol'dshleger U.I., Pribytkova N.V., Barzykin V.V. (1973) *Fizika gorenii i vzryva*. 9(1). pp. 119–123. (In Russian.)

The article was submitted 05.05.2023,
accepted for publication 12.12.2023.

Tsipilev Vladimir P., Ph.D., Professor of TPU, e-mail: tsipilev@tpu.ru;

Oleshko Vladimir I., Ph.D., Professor of TPU, e-mail: oleshko@tpu.ru;

Yakovlev Alexey N., Ph.D., Rector of KuzSTU, e-mail: yakovlevan@kuzstu.ru;

Forat Egor V., Senior Lecturer of TPU, e-mail: forat@tpu.ru;

Grechkina Tatiana V., Ph.D., Associate Professor of TPU, e-mail: greta_TV@tpu.ru.